

PCT

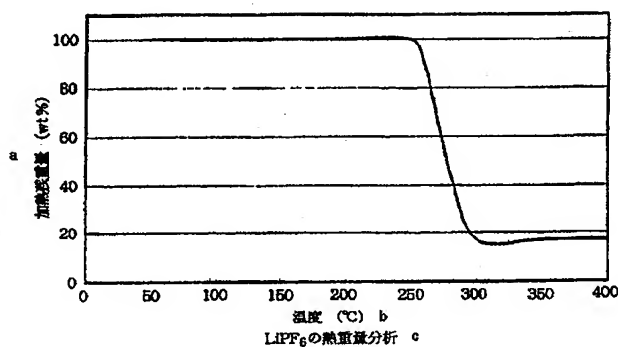
世界知的所有権機関  
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類7 C01B 25/445	A1	(11) 国際公開番号 WO00/29324  (43) 国際公開日 2000年5月25日(25.05.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/06386  (22) 国際出願日 1999年11月16日(16.11.99)  (30) 優先権データ 特願平10/327319 1998年11月17日(17.11.98) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) ステラ ケミファ株式会社 (STELLA CHEMIFA KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP] 〒541-0047 大阪府大阪市中央区淡路町3丁目6番3号 Osaka, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 菊山裕久(KIKUYAMA, Hirohisa)[JP/JP] 福留敏郎(FUKUDOME, Toshiro)[JP/JP] 脇 雅秀(WAKI, Masahide)[JP/JP] 〒590-0982 大阪府堺市海山町7丁目227番地 ステラ ケミファ株式会社内 Osaka, (JP)	(71) 出願人 ; および (72) 発明者 矢崎洋史(YAZAKI, Hiroshi)[JP/JP] 〒590-0982 大阪府堺市海山町7丁目227番地 ステラ ケミファ株式会社内 Osaka, (JP) (74) 代理人 福森久夫(FUKUMORI, Hisao) 〒102-0074 東京都千代田区九段南4丁目5番11号 富士ビル2F Tokyo, (JP)  (81) 指定国 KR, SG, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)  添付公開書類 国際調査報告書	

(54)Title: METHOD OF PURIFYING LITHIUM HEXAFLUOROPHOSPHATE

(54)発明の名称 六フッ化リン酸リチウムの精製法



a ... HEATING RESIDUE WEIGHT (wt.%)

b ... TEMPERATURE (°C)

c ... THERMOGRAVIMETRIC ANALYSIS OF LiPF<sub>6</sub>.

## (57) Abstract

A method of purifying lithium hexafluorophosphate, useful as an electrolyte for a secondary lithium battery or a catalyst for organic synthesis, to an extremely high purity. Phosphorus pentachloride is added to the lithium hexafluorophosphate to be purified which contains harmful impurities such as oxyfluorides and lithium fluoride. Hydrofluoric acid is further added to the lithium hexafluorophosphate in at least an equivalent amount based on the phosphorus pentachloride, and is reacted with the pentachloride to yield phosphorus pentafluoride, with which the lithium fluoride is converted to lithium hexafluorophosphate to conduct purification.

(57)要約

リチウム二次電池電解質や有機合成触媒として有用な六フッ化リン酸リチウムを極めて高純度に精製する方法を提供する。

オキシフッ化物やフッ化リチウムなどの有害な不純物を含む六フッ化リン酸リチウムに五塩化リンを加えて精製する。六フッ化リン酸リチウムには加える五塩化リンと当量以上のフッ化水素酸を存在せしめて反応させ、生成する五フッ化リンでフッ化リチウムを六フッ化リン酸リチウムに転換して精製する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロベニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロバキア
HA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	CN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BS	バハマ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CC	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CO	コロンビア	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
DE	ドイツ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DK	デンマーク	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
		KR	韓国	RO	ルーマニア		

WO 00/29324

1

PCT/JP99/06386

## 明細書

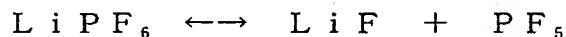
## 六フッ化リン酸リチウムの精製法

## 5 技術分野

本発明は、例えばリチウム二次電池電解質、有機合成用媒質として有用な六フッ化リン酸リチウムを極めて高純度に精製することができる六フッ化リン酸リチウムの精製法に関する。

## 10 背景技術

六フッ化リン酸リチウムは、一般に無水フッ化水素や有機溶媒などの非水溶媒中で合成させるが、溶媒中に存在する微量の水と反応し、オキシフッ化物やフッ化リチウムなどを生成して製出されて製品に混入して汚染する。また、六フッ化リン酸リチウムは無水フッ化水素や有機溶媒に溶解する際、一部は次式のように分解平衡している。



このLiFは製品に混入して不純物（不溶解残分）となる。

六フッ化リン酸リチウムは極めて強い吸湿性を有している為、微量な大気中の水分であっても加水分解が起こりフッ酸分が生成する。その他にフッ化リチウムやオキシフルオロリン酸リチウム（ $\text{LiPO}_x\text{F}_y$ ）が生成し不純物の原因となる。これら不純物を含むヘキサフルオロリン酸リチウムをリチウム電池用電解質として使用すると、フッ酸は電極材料を腐食し、フッ化リチウムは有機溶媒に不溶で残査になるため濾過除去が必要となり、オキシフルオロリン酸リチウムは有機溶媒の分解を促進して、内部電圧を上昇させ電池の容量を低下させたり、発火させたりする可能性を生ずる。

従来は、これら不純物を除去する方法として、六フッ化リン酸リチウムを有機溶媒に溶解し、イオン交換交換樹脂により不純物を除去する方法（特開昭59-87774号公報）や有機溶媒中で中和処理する方法（特開昭59-81870号公報）などがあるが、これらの方法では有機溶媒などに一旦溶解させるため精

WO 00/29324

2

PCT/JP99/06386

製プロセスが増えコストが高くなってしまいう欠点がある。

また、フッ素ガスでオキシフッ化リン酸化合物を反応除去する方法（特公平 4-16406 号公報、特公平 4-16407 号公報）や六フッ化リン酸リチウムを五フッ化リンを含むガスで接触させる方法（特開平 6-298507 号公報）などは、ガスを取り扱うために危険が伴い専門的な知識が必要になる。しかも使用するフッ素ガスや五フッ化リンガスを高純度に精製する必要があるためコストが高くなり製品の価格に大きく影響を及ぼす。

このように従来の方法はいずれも満足のいく方法ではなかった。

本発明は、六フッ化リン酸リチウムの製法工程あるいは取り扱い、保存中に生成し、製品に混入してくるフッ化水素、オキシフッ化物、フッ化リチウムなどの不純物を六フッ化リン酸リチウムに転換して高純度六フッ化リン酸リチウムを得ることが可能な六フッ化リン酸リチウム精製法を提供することを目的とする。

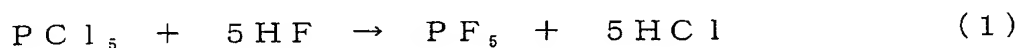
#### 発明の開示

本発明の六フッ化リン酸リチウム精製法は、精製前の六フッ化リン酸リチウム原料中のオキシフッ化物とフッ化リチウムを六フッ化リン酸リチウムに転換させるために必要な量以上の五フッ化リンを生成させるために必要な量の五塩化リンとフッ化水素とを精製前の六フッ化リン酸リチウム原料とともに反応系に存在せしめて反応させることにより精製を行うことを特徴とする。

#### 作用

本発明は、六フッ化リン酸リチウムに含有されるフッ化水素、オキシフッ化物、フッ化リチウムなどの不純物を五塩化リンを加えて六フッ化リン酸リチウムに転換して精製する。このとき、五塩化リンと当量以上のフッ化水素を存在せしめて反応させる。

このとき、五塩化リンはフッ化水素と反応して五フッ化リンを生成する。

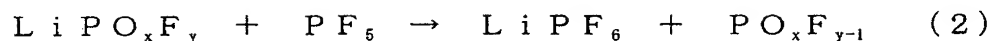


生成した五フッ化リンはオキシフッ化物やフッ化リチウムと夫々次のように反応して六フッ化リン酸リチウムに転換して精製される。

WO 00/29324

3

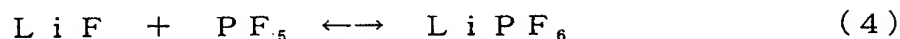
PCT/JP99/06386



式(1)に示した反応は常温・常圧で定量的に進行する。副生する塩化水素ガスは反応に関与することなく蒸気圧が高い為に製品に付着・残存することなく系外に排出される。

五塩化リンとフッ化水素の比はフッ化水素が化学当量以上が望ましいが、もし五塩化リンが余剰に有り未反応で残っても昇華温度が100℃であるのでこれ以上の温度で加熱すれば除去できる。

式(2)に示す五フッ化リンとオキシフッ化物との反応や式(3)に示す五フッ化リンとフッ化リチウムとの反応は温度依存性がある。温度が高ければ反応が進み易い。しかし、温度が250℃以上になれば次に示すような逆反応が起こり、不純物のフッ化リチウムの含有量が増加する。図1に六フッ化リン酸リチウムの示差熱分析例を示す。



> 250℃

五フッ化リンとオキシフッ化物、フッ化リチウムとの反応は常圧付近で十分進行するが、加圧条件下であることが望ましい。反応系を負圧にした場合は五フッ化リンとオキシフッ化物、フッ化リチウムとの反応が進行しにくくなるばかりでなく、逆に六フッ化リン酸リチウムの分解反応が起こり不純物が増加してくる。

このことは図2の反応系内圧力による遊離酸及び不溶解残分の関係に示される。また、この生成反応に要する時間は、温度や圧力などの条件や生成に供する六フッ化リン酸リチウムに含まれるフッ化水素、オキシフッ化およびフッ化リチウム含有量に左右されるが、数時間から一昼夜もあれば十分である。精製反応が終わったら乾いた窒素ガスを通して残存するフッ化水素、五フッ化リン、塩化水素、未反応の五塩化リンガスを完全に駆逐する。

#### 図面の簡単な説明

図1は、六フッ化リン酸リチウムの熱重量分析結果を示すグラフである。

図2は、反応系内圧力と遊離酸及び不溶解分との関係を示すグラフである。

WO 00/29324

4

PCT/JP99/06386

発明を実施するための最良の形態

(実施例 1)

1 L の P F A 容器にフッ化水素 4 %、オキシフッ化物 ( $\text{LiPOF}_4$ ) 50 p p m、フッ化リチウム 0. 1 3 % を含む粗製六フッ化リン酸リチウム 500 g をとり、これに五塩化リン 5. 5 g を加えてよく混合し、容器を窒素ガスフローでシールして、760 T o r r、105℃で一夜加熱して反応させた。窒素ガスで残存ガスを駆逐して精製六フッ化リン酸リチウムを得た。この中の不純物を定量したところフッ化水素 30 p p m、オキシフッ化物 10 p p m 以下、フッ化リチウム 0. 0 4 % であった。なお、オキシフッ化物とフッ化リチウムに対する必要な五塩化リンの化学量論量は 5. 3 g であり、ここでは 1. 0 倍で添加した。

(比較例 1)

1 L の P F A 容器にフッ化水素 4 %、オキシフッ化物 ( $\text{LiPOF}_4$ ) 50 p p m、フッ化リチウム 0. 1 3 % を含む粗製六フッ化リン酸リチウム 500 g をとり、これに不純物を六フッ化リン酸リチウムに転換するのに必要量の約半量の五塩化リン 2. 7 g を加えて良く混合して以降 (実施例 1) と同じように操作した。得られた製品の不純物を定量したところフッ化水素 50 p p m、オキシフッ化物 30 p p m、フッ化リチウム 0. 0 8 % であり、不純物のフッ化リチウムの六フッ化リン酸リチウムに転換がやや不十分であった。なお、五塩化リン添加量は実施例 1 の化学量論量の半量とした。

20 (実施例 2)

1 L の P F A 容器にフッ化水素 150 p p m、フッ化リチウム 0. 1 0 % を含む六フッ化リン酸リチウム 500 g をとり、これに五塩化リン 4. 0 g を加えてよく混合した。さらに五塩化リンに相当する液体のフッ化水素 2. 0 g を加えた。容器を窒素ガスフローでシールして 760 T o r r、105℃で一夜加熱して反応させた。窒素ガスで残存ガスを駆逐して精製六フッ化リン酸リチウムを得た。この中の不純物を定量したところフッ化水素 40 p p m、フッ化リチウム 0. 0 2 % であった。なお、五塩化リン 4. 0 g に対するフッ化水素の化学量論量は 1. 9 g である。

(比較例 2)

WO 00/29324

5

PCT/JP99/06386

1 L の P A F 容器にフッ化水素 1 5 0 p p m、フッ化リチウム 0. 1 0 % を含む六フッ化リン酸リチウム 5 0 0 g をとり、これに五塩化リン 4. 0 g を加えてよく混合した。さらに五塩化リンと当量の約半量 0. 9 g の液体のフッ化水素を加えて、以降実施例 2 と同じように操作した。得られた製品の不純物を定量したところフッ化水素 2 0 p p m、フッ化リチウム 0. 0 5 % であった。フッ化リチウムの六フッ化リン酸リチウムへの転換が不十分であった。なお、フッ化水素の添加量は実施例 2 で示した化学量論量の約半量である。

(実施例 3)

S U S 3 1 6 製 3 L の容器にフッ化水素 0. 5 %、フッ化リチウム 0. 1 1 % を含む粗製六フッ化リン酸リチウム 1 k g をとり、五塩化リン 9. 0 g を加えて良く混合した。これを 2 0 0 °C に保った加温装置に入れて 6 時間反応させた。このとき容器内の圧力が上がってきたので 1 5 0 0 T o r r 程度に調整して行った。反応終了後内圧を抜き、さらに窒素ガスを通じて内部のガスを駆逐して、精製六フッ化リン酸リチウムを得た。不純物を分析したところ、フッ化水素 2 5 p p m、フッ化リチウム 0. 0 2 % であった。なお、本例では、フッ化リチウムに対して必要な五塩化リンは化学当量添加した。

(比較例 3)

S U S 3 1 6 製の 3 L の容器にフッ化水素 0. 1 1 %、フッ化リチウム 0. 1 1 % を含む粗製六フッ化リン酸リチウム 1 k g をとり、五塩化リン 9. 0 g を加えて良く混合した。これを 2 7 0 ~ 2 8 0 °C に保った加温装置に入れて 6 時間反応させた。このとき、容器内の圧力が上がってきたので 1 5 0 0 T o r r 程度に調整して行った。以降（実施例 3）と同様に操作した。得られた六フッ化リン酸リチウムの不純物を分析したところ、フッ化水素 2 0 p p m、フッ化リチウム 0. 2 % であった。温度が高すぎた為に六フッ化リン酸リチウムが分解した。なお、五塩化リンの添加量は実施例 3 と同量とした。

(実施例 4)

S U S 3 1 6 製 3 L の容器にフッ化水素 0. 5 %、フッ化リチウム 0. 1 1 % を含む粗製六フッ化リン酸リチウム 1 k g をとり、五塩化リン 9. 0 g を加えて良く混合した。これを 1 0 5 °C に加温して 1 0 時間反応させた。このとき容器内

WO 00/29324

6

PCT/JP99/06386

の圧力は2500 Torrに達した。反応終了後内圧を抜き、さらに窒素ガスを通じて内部のガスを駆逐して、精製六フッ化リン酸リチウムを得た。不純物を分析したところ、フッ化水素20 ppm、フッ化リチウム0.01%であった。なお、五塩化リンの添加量は実施例3の化学量論量とした。

5 (比較例4)

SUS316製3L容器にフッ化水素0.5%、フッ化リチウム0.11%を含む粗製六フッ化リン酸リチウム1kgをとり、五塩化リン9.0gを加えて良く混合した。105℃に加温して10時間反応させた。このとき容器内の圧力を400 Torrになるように真空ポンプで減圧しながら行った。反応終了後、内部に窒素ガスをブローした。得られた六フッ化リン酸リチウムの不純物を分析したところ、フッ化水素20 ppm、フッ化リチウム0.26%であった。減圧加熱のため六フッ化リン酸リチウムが分解した。なお、五塩化リンの添加量は実施例3の化学量論量とした。

15 産業上の利用可能性

本発明は、リチウム二次電池用電解質や有機合成触媒として有用な高純度六フッ化リン酸リチウムの精製を容易に行える。オキシフッ化物やフッ化リチウムなどの有害な不純物を五塩化リンと当量以上のフッ化水素酸を存在せしめて反応させ、精製する五フッ化リンでオキシフッ化物やフッ化リチウムを六フッ化リン酸リチウムに転換して精製させるのが特徴である。五塩化リンを用いることは、コスト面で安価であり、しかも五塩化リンは固体であるため取り扱いが容易である。それとは逆に、五フッ化リンを含むガスで六フッ化リン酸リチウムを高純度にする方法ではガスを直接取り扱うため危険性が伴い、専門的な知識が必要となる。また、精製に必要な高純度五フッ化リンガスを製造するのはコストが非常に高くなる。

25 本発明は、精製過程で五塩化リンを使用することにより高純度六フッ化リン酸リチウムを安価でかつ大量に生産するのに大きな効果が期待できる。



WO 00/29324

7

PCT/JP99/06386

## 請求の範囲

1. 精製前の六フッ化リン酸リチウム原料中のオキシフッ化物とフッ化リチウムを六フッ化リン酸リチウムに転換させるために必要な量以上の五フッ化リンを生成させるために必要な量の五塩化リンとフッ化水素とを精製前の六フッ化リン酸リチウム原料とともに反応系に存在せしめて反応させることにより精製を行うことを特徴とする六フッ化リン酸リチウムの精製法。
2. 反応に用いるフッ化水素は液体及び／又は気体であることを特徴とする請求項 1 に記載の六フッ化リン酸リチウムの精製法。
- 10 3. 反応させる温度は常温から 250℃以下であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の六フッ化リン酸リチウムの精製法。
4. 反応させる圧力が 680 Torr 以上であることを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれか 1 項記載の六フッ化リン酸リチウムの精製法。
5. 反応させる圧力が 760～3800 Torr であることを特徴とする請求
- 15 項 4 に記載の六フッ化リン酸リチウムの精製法。

WO 00/29324

1/1

PCT/JP99/06386

FIG.1

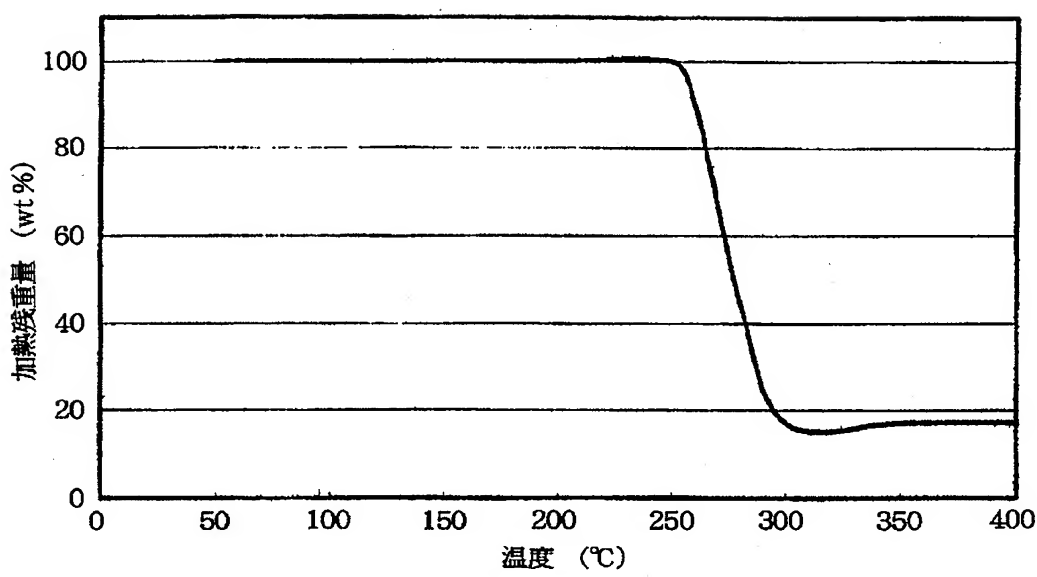
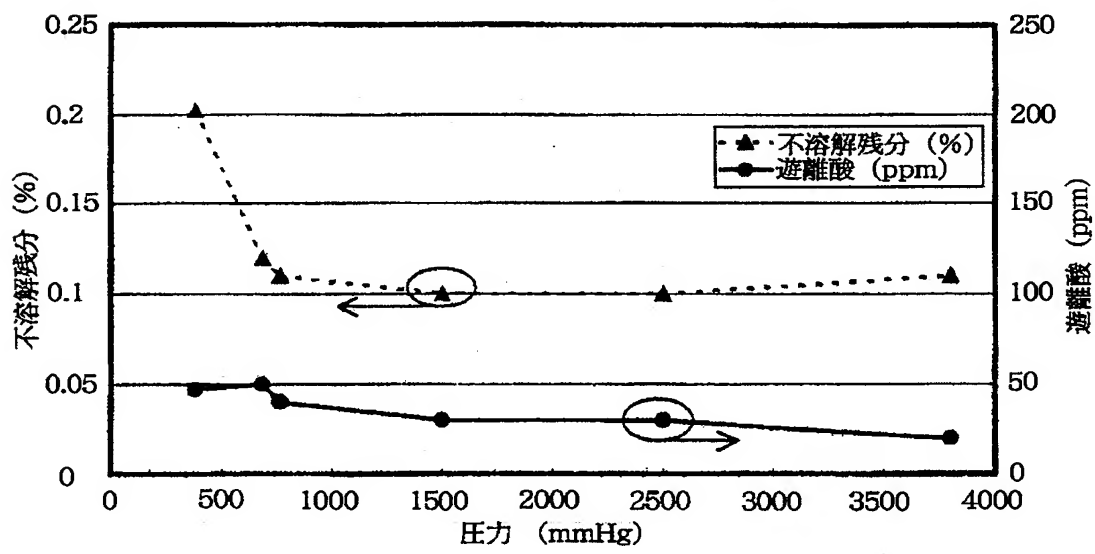


FIG.2



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06386

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> C01B25/445

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C01B25/445, H01M6/16, H01M10/40

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI hexafluorophosphate, lithium

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-092468, A (Central Glass Co., Ltd.), 10 April, 1998 (10.04.98), Claims; Par. Nos. [0014] to [0018]; example 6, & CA, 2193119, A	1-5
PA	JP, 11-147705, A (Central Glass Co., Ltd.), 02 June, 1999 (02.06.99), Claims; example (Family: none)	1-5
A	JP, 10-072207, A (Solvay Fluor und Derivate GmbH), 17 March, 1998 (10.04.98), Claims; Par. Nos. [0014] to [0016]; example, & DE, 19625448, A & EP, 816289, A & US, 5866093, A	1-5
A	JP, 59-081870, A (Hitachi Maxell, Ltd.), 11 May, 1984 (11.05.84), Claims; page 3, upper left column, line 14 to upper right column, line 5 (Family: none)	1-5
A	JP, 6-298506, A (Central Glass Co., Ltd.), 25 October, 1994 (25.10.94),	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to
"A" document defining the general state of the art which is not	understand the principle or theory underlying the invention
considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
"E" earlier document but published on or after the international filing	considered novel or cannot be considered to involve an inventive
date	step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
cited to establish the publication date of another citation or other	considered to involve an inventive step when the document is
special reason (as specified)	combined with one or more other such documents, such
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combination being obvious to a person skilled in the art
means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later	
than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
07 February, 2000 (07.02.00)

Date of mailing of the international search report  
15 February, 2000 (15.02.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 99/06386

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int Cl<sup>7</sup> C 01 B 25/445

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int Cl<sup>7</sup> C 01 B 25/445, H 01 M 6/16, H 01 M 10/40

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
WPI hexafluorophosphate, lithium

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-092468, A (セントラル硝子株式会社) 10.4月.1998 (10.04.98) 特許請求の範囲, 【0014】 - 【0018】, 実施例6&CA2193119, A	1-5
PA	JP, 11-147705, A (セントラル硝子株式会社) 2.6月.1999 (02.06.99) 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-5
A	JP, 10-072207, A (ゾルファイ フルーオル ウント デリヴァーテ ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング) 17.3 月.1998 (17.03.98) 特許請求の範囲, 【0014】 - 【0016】, 実施例&DE 19625448, A&EP816289, A&US5866093, A	1-5

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 07.02.00

国際調査報告の発送日 15.02.00

国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/J P)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
大工原 大二

4G 9343

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP99/06386

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 59-081870, A(日立マクセル株式会社) 11. 5月. 1984(11. 05. 84) 特 許請求の範囲, 第3頁左上欄第14行-同頁右上欄第5行(ファミリーなし)	1-5
A	JP, 6-298506, A(セントラル硝子株式会社) 25. 10月. 1994(25. 10. 94) 特許請求の範囲, 実施例(ファミリーなし)	1-5